



PCT

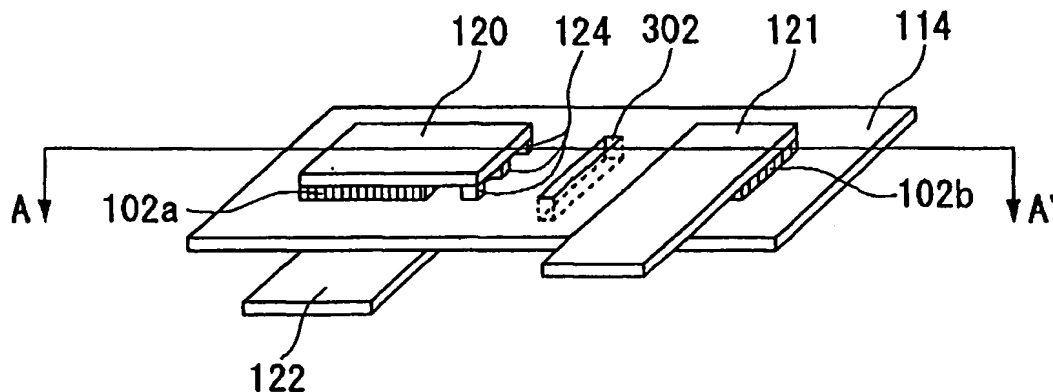
(10) 国際公開番号
WO 03/105265 A1

- Tokyo (JP). 渡辺 秀 (WATANABE, Suguru); 〒108-8001 東京都港区芝五丁目7番1号 日本電気株式会社内 Tokyo (JP). 吉武 務 (YOSHITAKE, Tsutomu); 〒108-8001 東京都港区芝五丁目7番1号 日本電気株式会社内 Tokyo (JP). 黒島 貞則 (KUROSHIMA, Sadanori); 〒108-8001 東京都港区芝五丁目7番1号 日本電気株式会社内 Tokyo (JP). 中村 新 (NAKAMURA, Shin); 〒108-8001 東京都港区芝五丁目7番1号 日本電気株式会社内 Tokyo (JP). 島川 祐一 (SHIMAKAWA, Yuichi); 〒108-8001 東京都港区芝五丁目7番1号 日本電気株式会社内 Tokyo (JP). 眞子 隆志 (MANAKO, Takashi); 〒108-8001 東京都港区芝五丁目7番1号 日本電気株式会社内 Tokyo (JP). 今井 英人 (IMAL, Hideto); 〒108-8001 東京都港区芝五丁目7番1号 日本電気株式会社内 Tokyo (JP). 久保 佳実 (KUBO, Yoshimi); 〒108-8001 東京都港区芝五丁目7番1号 日本電気株式会社内 Tokyo (JP).

〔続葉有〕

(54) Title: LIQUID FUEL FEED TYPE FUEL CELL

(54) 発明の名称: 液体燃料供給型燃料電池



(57) Abstract: A liquid fuel feed type fuel cell that has a simple structure, realizes high output and is in miniaturized and thin form. In particular, a liquid fuel feed type fuel cell comprising a solid polymer electrolyte membrane and, arranged so as to interpose the same, multiple fuel electrodes on one side of the solid polymer electrolyte membrane and multiple oxidizer electrodes on the other side thereof so as to constitute multiple unit cells, these multiple unit cells electrically connected to each other through connection electrodes that pass through the solid polymer electrolyte membrane. Channels are provided at zones lying between adjacent unit cells on the solid polymer electrolyte membrane, so that the migration of hydrogen ion to adjacent unit cell can be restrained to thereby prevent voltage drop.

(57) 要約: 簡素な構造を有し、高出力かつ小型化および薄型化された液体燃料供給型燃料電池を提供することを目的として、固体高分子電解質膜を挟んで、固体高分子電解質膜の一方の面に複数の燃料極を、他方の面に複数の酸化剤極をそれぞれ配置して、複数の単位セルを構成し、これらの単位セルを、固体高分子電解質膜を貫通する接続電極により電気的に接続している。固体高分子電解質膜上の隣接する単位セル間の領域に溝部が設けられているため、隣接する単位セルへの水素イオンの移動が抑制され、電圧降下が防止される。



(74) 代理人: 宮崎 昭夫, 外(MIYAZAKI, Teruo et al.); 〒
107-0052 東京都港区赤坂1丁目9番20号第16興
和ビル8階 Tokyo (JP).

添付公開書類:
— 国際調査報告書

(81) 指定国 (国内): CA, CN, KR.

2文字コード及び他の略語については、定期発行される
各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語
のガイダンスノート」を参照。

(84) 指定国 (広域): ヨーロッパ特許 (AT, BE, BG, CH, CY,
CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IT, LU, MC,
NL, PT, RO, SE, SI, SK, TR).

明細書

液体燃料供給型燃料電池

技術分野

本発明は、液体燃料を燃料極へ直接供給しながら発電する燃料電池に関する。

背景技術

固体高分子型燃料電池は、パーフルオロスルホン酸膜等のイオン交換膜を電解質膜として用い、このイオン交換膜の両面にそれぞれ電極（燃料極および酸化剤極）が接合された構成であり、燃料極に水素、酸化剤極に酸素あるいは空気が供給されて、電気化学反応により発電する装置である。この電気化学反応を起こすために、通常、固体高分子型燃料電池は、固体高分子電解質膜であるイオン交換膜と、イオン交換膜の両面に形成された、触媒物質が担持された炭素微粒子と固体高分子電解質との混合体からなる触媒層と燃料および酸化ガスの供給と拡散のための多孔質性炭素材料からなるガス拡散層（供給層）とからなる電極と、炭素あるいは金属の導電性薄板からなる集電体とで構成されている。

前記した構成において、燃料極に供給された燃料は、ガス拡散層（供給層）中の細孔を通過して触媒に達し、触媒の作用で燃料が分解されて、電子と水素イオンが生成される。電子は、燃料極中の触媒担体とガス拡散層（供給層）とを通過して外部回路へ導き出され、外部回路より酸化剤極に流れ込む。一方、水素イオンは燃料極中の電解質および両電極間の固体高分子電解質膜を通過して酸化剤極に達し、酸化剤極に供給された酸素と外部回路より流れ込む電子と反応して水を生じる。この結果、外部回路では燃料極から酸化剤極へ向かって電子が流れ、電力が取り出される。

しかしながら、このような基本的構成の固体高分子型燃料電池単体の電池電圧は、各電極における酸化還元電位差に相当することから、理想的な開放電圧であっても高々1.23Vである。このため、様々な機器に搭載する駆動電源としては、電池出力の点で必ずしも充分とは言えない。例えば、携帯用電子機器の多く

は電源として1.5～4V程度以上の入力電圧を必要とするため、そのような携帯用電子機器の駆動電源として固体高分子型燃料電池を使用する場合には、燃料電池の単位セルを直列に接続し、電池の電圧を上げる必要がある。

そこで、電池電圧を上昇させるために、燃料電池の単位セルを積層した構成にして十分な電圧を確保することが考えられるが、このようにすると電池全体が厚くなるため、薄型化が要請される携帯用電子機器などの駆動電源としては好ましいとは言えない。

電池電圧を上昇させつつ電池の薄型化を実現する技術として、例えば特開平8-273696号公報には、同一平面上に複数のセルを組み込んだ燃料電池と、この燃料電池を複数枚重ねるスタック構造が開示されている。

また、特開平8-171925号公報や特開2002-110215号公報には、1枚の電解質膜の一方の面に複数の酸化剤極が配置され、当該電解質膜の他方の面に複数の燃料極が配置されることにより、複数の単位セルを同一平面上に有する燃料電池が開示されている。

前記した従来の技術は、複数のセルを電氣的に接続することにより高出力化が可能であるので、機器駆動のために十分な電源電圧を得るという点においてある程度の効果を奏している。

しかしながら、特開平8-273696号公報に記載の技術においては、平面内に配された各単位セルの燃料極と酸化剤極の向きが一樣ではないため、各単位セル毎に分離して燃料および酸化剤ガスを供給する必要がある。また、各単位セル内の燃料または酸化剤ガスが隣接する単位セルに流入することを防ぐため、各単位セル毎に密閉する保持機構を必要とする。このため、燃料電池の単位セル間の間隔は、燃料および酸化剤ガスの供給機構や保持機構の大きさに依存し、充分な小型化を達成することが難しかった。さらに、構成部品数が多くなるなど、小型化およびコストの面から改善の余地を有していた。

また、特開平8-171925号公報に記載の技術においては、ある単位セルの燃料極において生成した水素イオンが、その単位セルの酸化剤極ではなく、隣接する単位セルの酸化剤極へ移動し（電氣的リーク）、電圧が低下してしまうと

いう課題を有していた。特に、単位セル間の間隔が電解質膜の厚さと同程度に小さい場合には、電氣的リークが顕著であり、電圧の低下が避けられなかった。

また、特開2002-110215号公報に記載のスルーホール接続方式においては、隣接する酸化剤極への電氣的リークに加え、スルーホール内に挿通された導電部材へ水素イオンが移動することによる電氣的リークも生じるという課題を有していた。この構成の場合にも、特に、単位セル間の間隔が小さいほど、電氣的リークが顕著であり電圧の低下が大きい。

発明の開示

前記事情に鑑み、本発明は、簡素な構造を有し、高出力かつ小型化および薄型化が可能な液体燃料供給型燃料電池を提供することにある。

前記課題を解決するために、本発明によれば、固体電解質膜と、固体電解質膜の一方の面に配置された複数の燃料極と、固体電解質膜の他方の面に複数の燃料極と対向して配置された複数の酸化剤極とを含み、燃料極と酸化剤極と固体電解質膜とからなる、複数の単位セルが電氣的に接続されていることを特徴とする液体燃料供給型燃料電池が提供される。本発明における液体燃料供給型燃料電池とは、液体燃料を燃料極に直接供給しながら発電する燃料電池である。ダイレクトメタノール型燃料電池は、液体燃料供給型燃料電池の一形態である。

本発明の液体燃料供給型燃料電池は、1枚の固体電解質膜を共有する複数の単位セルが電氣的に接続された構成である。このため、単位セル同士を相対的に固定する部材を別に必要としないため、簡素な構造で高出力が得られる燃料電池が実現する。

さらに、固体電解質膜の一方の面には燃料極が、他方の面には酸化剤極がそれぞれ配置されているため、各単位セル毎に燃料あるいは酸化剤を供給する流路などを設ける必要がなく、複数の単位セルに対して一度に燃料や酸化剤を供給することが可能である。したがって、機構を簡素化することができるため、燃料電池の小型化を図ることが可能となる。

また、本発明によれば、前記した液体燃料供給型燃料電池において、固体電解

質膜を貫通する導電部材をさらに備え、複数の単位セルのうちの少なくとも2つが、導電部材を介して直列に接続されている。これによって、投影面積を増大することなく単位セルを直列に接続することが可能となる。したがって、燃料電池全体を一層小型化することができる。

前記した液体燃料供給型燃料電池において、導電部材と固体電解質膜との間に挟まれたシール材をさらに備えていることが好ましい。導電部材と固体電解質膜との間に間隙が存在する場合、燃料と酸化剤が混合してしまい燃料が空費されるが、シール材を備えることにより、導電部材と固体電解質膜とが形成する間隙を完全に塞ぐことができるため、燃料の空費を抑制することができる。

さらに、前記した液体燃料供給型燃料電池において、導電部材の表面が、絶縁性を有する材料によりコーティングされていることが好ましい。導電部材と単位セルが接近して設けられている場合、単位セルの燃料極で生じた水素イオンが酸化剤極へ向かわずに、導電部材へ移動することが起こりうる。これが生じると、電氣的リークと同様に電圧の低下を招く。そこで、導電部材の表面を絶縁性を有する材料によりコーティングすることにより、水素イオンの導電部材への移動を防止することができ、電圧の低下を抑制することが可能となる。

また、前記した液体燃料供給型燃料電池において、固体電解質膜の、単位セルの間の領域に、低イオン伝導性の領域が設けられていることが好ましい。本発明の液体燃料供給型燃料電池においては、各単位セル間の間隔を狭めることにより、さらに燃料電池の小型化を図ることができる。しかしながら、このような場合、前記したように電氣的リークが生じるため、電圧が低下してしまうという課題が生じる。そこで、前記した通り、固体電解質膜の隣接する単位セル間の領域に低イオン伝導性領域を設けることにより、電氣的リークの発生を防止できる。このため、各単位セルの間隔を、固体電解質膜の厚さと同程度まで小さくした場合においても、電圧の低下が抑制され、小型かつ薄型で高出力の液体燃料供給型燃料電池が実現する。ここで、本発明における低イオン伝導性領域とは、他の領域と比較して、水素イオンの伝導性が低い領域をいう。

本発明では、前記した燃料電池において、低イオン伝導性領域が、固体電解質

膜に溝部が形成された領域であってもよい。

また、本発明では、前記した燃料電池において、低イオン伝導性領域が、固体電解質膜に凹部が形成された領域であってもよい。

このような構成にすることによって低イオン伝導性領域を設けることができ、固体電解質膜を介した単位セル間の水素イオンの移動を抑制することができるため、電圧低下が効果的に抑制された高出力の燃料電池が実現する。

本発明では、前記した燃料電池において、溝部または凹部に絶縁性樹脂が充填されていてもよい。溝部または凹部を絶縁性樹脂によって充填することにより、固体電解質膜を介した単位セル間の水素イオンの移動をより一層抑制することが可能となり、出力の一層高い燃料電池を得ることが可能となる。絶縁性樹脂としては、フッ素系樹脂、ポリイミド系樹脂、フェノール系樹脂、エポキシ系樹脂のいずれかを用いることが好ましい。これらの樹脂を用いることにより、溝部または凹部に対し、簡便かつ確実に絶縁性樹脂を充填することができる。

また、本発明によれば、前記した燃料電池において、2つ以上の燃料極を覆う燃料流路をさらに備え、燃料流路の隔壁の一部が固体電解質膜であることを特徴とする燃料電池が提供される。この燃料電池は、固体電解質膜を燃料流路の隔壁の一部として利用しているため、構成部品数が少なく、構造が簡素である。このため、燃料電池全体の小型化および薄型化に寄与することができる。

また、本発明によれば、前記した燃料電池において、複数の単位セルのうちの少なくとも2つが並列に接続されたことを特徴とする燃料電池が提供できる。本発明の燃料電池においては、複数の単位セルを並列に接続することが可能であるため、所望の電圧または電流値を有する燃料電池を得ることが可能である。

以上説明したように、本発明によれば、簡素な構造を有し、高出力かつ小型化および薄型化された固体高分子型燃料電池を提供することが可能となる。

図面の簡単な説明

図1 A、1 Bは本発明の燃料電池の実施形態を示す図である。

図2 A、2 Bは本発明の燃料電池の他の実施形態を示す図である。

図 3 A、3 Bは本発明の燃料電池のさらに他の実施形態を示す図である。

図 4 A、4 Bは本発明の燃料電池のさらに他の実施形態を示す図である。

図 5 A、5 Bは本発明の燃料電池のさらに他の実施形態を示す図である。

発明を実施するための最良の形態

以下、図 1 A～5 Bを参照して、本発明の実施形態の燃料電池の構成および動作について説明する。

図 2 Aは、本発明の実施形態の燃料電池の構造を模式的に表した斜視図であり、図 2 Bは、図 2 Aの A-A' 線断面図である。図 2 Aおよび 2 Bに示されるように、一枚の固体高分子電解質膜 114 の一方の面に燃料極（一方の電極）102 a、102 bが配置され、固体高分子電解質膜 114 の他方の面には酸化剤極（他方の電極）108 a、108 bが配置されている。また、燃料極 102 a、102 b上には集電体 120、121が、酸化剤極 108 a、108 b上には集電体 122、123がそれぞれ配置されて接続されている。また、集電体 121および 122は、固体高分子電解質膜 114 を貫通する接続電極 124により電氣的に接続されている。なお、燃料極 102 a、102 bおよび酸化剤極 108 a、108 bは、図示しない基体および触媒層から構成されている。

以上のように構成された燃料電池において、図 2 Bに示されるように、燃料極 102 a、102 bには燃料 125が、酸化剤極 108 a、108 bには空気あるいは酸素などの酸化剤 126が供給される。本実施形態の燃料電池においては、固体高分子電解質膜 114 を挟んで、複数の単位セルの燃料極 102 a、102 bが一方の側に、酸化剤極 108 a、108 bが他方の側にそれぞれ配置されている。したがって、図 2 Bに模式的に示している通り、燃料 125を供給する燃料流路および酸化剤 126を供給する酸化剤流路はそれぞれ一系統で足りるため、燃料電池の構造を簡素化することが可能となる。ここで、固体高分子電解質膜 114 は、燃料極側と酸化剤極側を隔てる隔壁の役割を有しているため、燃料 125が酸化剤極側に進入することはない、また酸化剤 126が燃料極側に進入することもない。

固体高分子電解質膜 114 は、燃料極 102 a、102 b と酸化剤極 108 a、108 b とを隔てるとともに、両者の間で水素イオンを移動させるイオン交換膜としての役割を有する。このため、固体高分子電解質膜 114 は、水素イオンの導電性が高い膜であることが好ましい。また、化学的に安定であって機械的強度が高いことが好ましい。固体高分子電解質膜 114 を構成する材料としては、スルホン基、リン酸基、ホスホン基、ホスフィン基などの強酸基や、カルボキシル基などの弱酸基などの極性基を有する有機高分子が好ましく用いられる。このような有機高分子としては、

スルホン化ポリ（４－フェノキシベンゾイル－１，４－フェニレン）、アルキルスルホン化ポリベンゾイミダゾールなどの芳香族含有高分子；

ポリスチレンスルホン酸共重合体、ポリビニルスルホン酸共重合体、架橋アルキルスルホン酸誘導体、フッ素樹脂骨格およびスルホン酸からなるフッ素含有高分子などの共重合体；

アクリルアミド－２－メチルプロパンスルホン酸のようなアクリルアミド類と α －ブチルメタクリレートのようなアクリレート類とを共重合させて得られる共重合体；

スルホン基含有パーフルオロカーボン（例えば、デュポン社製ナフィオン（商品名）、旭化成社製アシプレックス（商品名））；

カルボキシル基含有パーフルオロカーボン（例えば、旭硝子社製フレミオン S 膜（商品名））；

などが例示される。

スルホン化ポリ（４－フェノキシベンゾイル－１，４－フェニレン）、アルキルスルホン化ポリベンゾイミダゾールなどの芳香族含有高分子を選択した場合には、有機液体燃料の透過を抑制でき、クロスオーバーによる電池効率の低下を抑えることができる。

燃料極 102 a、102 b および酸化剤極 108 a、108 b は、たとえば、触媒を担持した炭素粒子と固体高分子電解質の微粒子とを含む膜（触媒層）が基体（ガス拡散層）上に形成された構成とすることができる。基体には、燃料極、

酸化剤極ともに、カーボンペーパー、カーボンの成形体、カーボンの焼結体、焼結金属、発泡金属などの多孔性基体を用いることができる。また、基体表面は撥水処理されていてもよく、基体の撥水処理にはポリテトラフルオロエチレンなどの撥水剤を用いることができる。

燃料極の炭素粒子に担持される触媒としては、白金、ロジウム、パラジウム、イリジウム、オスミウム、ルテニウム、レニウム、金、銀、ニッケル、コバルト、リチウム、ランタン、ストロンチウム、イットリウムなどが例示され、これらを単独または二種類以上組み合わせて用いることができる。一方、酸化剤極の炭素粒子に担持される触媒としては、燃料極の触媒と同様のものが用いることができ、前記例示物質を使用することができる。なお、燃料極および酸化剤極の触媒は互いに同じものを用いても異なるものを用いてもよい。

触媒を担持する炭素粒子としては、アセチレンブラック（例えば電気化学社製デンカブラック（商品名）、Vulcan 社製XC72（商品名）など）、ケッチェンブラック、カーボンナノチューブ、カーボンナノホーンなどが例示される。炭素粒子の粒径は、たとえば、 $0.01 \sim 0.1 \mu\text{m}$ 、好ましくは $0.02 \sim 0.06 \mu\text{m}$ である。

燃料125としては、メタノール、エタノール、ジエチルエーテルなどの有機液体燃料を用いることができる。

燃料極102a、102bおよび酸化剤極108a、108bの作製方法は、特に制限がないが、たとえば以下のようにして作製することができる。

燃料極102a、102bおよび酸化剤極108a、108bの炭素粒子による触媒の担持は、一般的に行われている含浸法によって行うことができる。そして、触媒を担持した炭素粒子と固体高分子電解質粒子を溶媒に分散させ、ペースト状とした後、これを基体に塗布し乾燥することによって、燃料極102a、102bおよび酸化剤極108a、108bを得ることができる。ここで、炭素粒子の粒径は、たとえば $0.01 \sim 0.1 \mu\text{m}$ とする。また、触媒粒子の粒径は、たとえば $1 \text{nm} \sim 10 \text{nm}$ とする。また、固体高分子電解質粒子の粒径は、たとえば $0.05 \sim 1 \mu\text{m}$ とする。炭素粒子と固体高分子電解質粒子とは、たとえば

、重量比が2：1～40：1の範囲で用いられる。また、ペースト中の水と溶質との重量比は、たとえば、1：2～10：1程度とする。基体へのペーストの塗布方法については特に制限がないが、たとえば、刷毛塗り、スプレー塗布、およびスクリーン印刷等の方法を用いることができる。ペーストは、約1 μ m～2 mmの厚さで塗布される。ペーストを塗布した後、使用するフッ素樹脂に応じた加熱温度および加熱時間で加熱し、燃料極102a、102bまたは酸化剤極108a、108bが作製される。加熱温度および加熱時間は、用いられる材料によって適宜に選択されるが、たとえば、加熱温度を100℃～250℃、加熱時間を30秒間～30分とすることができる。

固体高分子電解質膜114は、用いられる材料に応じて適宜な方法を採用して作製することができる。たとえば、固体高分子電解質膜114を有機高分子材料で構成する場合、有機高分子材料を溶媒に溶解または分散した液体を、ポリテトラフルオロエチレン等の剥離性シート等の上にキャストして乾燥させることにより得ることができる。

固体高分子電解質膜114を貫通するように接続電極124が設けられている。接続電極124は、後述する集電体120および123を電氣的に接続するための導電部材である。接続電極124は、たとえば固体高分子電解質膜114に予め設けられた貫通孔に挿通することができる。また、固体高分子電解質膜114に予め貫通孔を設けておかず、接続電極124を直接固体高分子電解質膜に突き刺して、貫通孔を設けつつ貫通させてもよい。

固体高分子電解質膜114と接続電極124との隙間から燃料や酸化剤が漏れるのを防止するために、たとえば、貫通孔よりも幾分小さめの径の孔部を有するシール材306（図1A、1B参照）を、その孔部と貫通孔を位置合わせした状態で貫通孔上に載せておき、接続電極124をそのシール材306の上から挿通させることもできる。こうすることにより、貫通孔と接続電極124の隙間を完全に塞ぐことが可能となる。シール材306としては、たとえばテトラフルオロエチレン樹脂製フィルムやシリコン製フィルムを使用することができる。

このようにして作製した固体高分子電解質膜114を、燃料極102a、10

2 b および酸化剤極 108 a、108 b で挟み、ホットプレスし、電極—電解質接合体を得る。このとき、両電極（燃料極 102 a、102 b および酸化剤極 108 a、108 b）の触媒が設けられた面と固体電解質膜 114 とが接するようにする。ホットプレスの条件は、材料に応じて選択されるが、固体電解質膜 114 や電極（燃料極 102 a、102 b および酸化剤極 108 a、108 b）の表面の電解質を有機高分子で構成する場合、これらの有機高分子の軟化温度やガラス転位温度を超える温度で行うことができる。具体的には、例えば、温度が 100～250℃、圧力が 1～100 kg/cm²、時間が 10 秒～300 秒の条件でホットプレスが行われる。

前記したようにして得られた電極—電解質接合体を、集電体 120～123 により挟持する。その後、固体高分子電解質膜 114 を貫通する接続電極 124 により、燃料極 102 b 上に配置されて接続された集電体 121 と、酸化剤極 108 a 上に配置されて接続された集電体 122 とを電氣的に接続する。こうして、2 つの単位セルが直列接続された燃料電池を得ることができる。接続電極 124 と集電体 120 および 123 の接続方法は特に限定されないが、例えば、接続電極 124 と集電体 120 または集電体 123 をかしめることにより接続したり、または溶接することにより接続することができる。なお、集電体 120～123 および接続電極 124 は導電性を有する部材であり、例えばステンレスやチタンなどから形成することができる。

本実施形態の燃料電池においては、前記した従来技術のように密閉性を有する保持機構を必要としないため、各単位セル同士を近付けて配置し、省スペース化を図ることにより、高密度実装を実現できる。しかしながら、各単位セル同士を固体高分子電解質膜の厚さと同じ程度まで近付けて配置した場合には、ある単位セルの燃料極において生成した水素イオンが、その単位セルの酸化剤極ではなく、隣接する単位セルの酸化剤極へ移動してしまう、いわゆる電氣的リークが生じ得る。このように移動する水素イオンは電圧降下の原因となる。そこで本実施形態では、この電氣的リークを防止するために、図 2 A、2 B に示すように、単位セルと単位セルとの間の領域に溝部 302 を設けている。図 2 A は、溝部 302

が設けられた構成の斜視図であり、図 2 BはそのA-A' 線断面図である。

また、図 3 A、3 Bに示すように、単位セルと単位セルとの間の領域に、溝部 3 0 2 に代えて凹部 3 0 3 を設けることもできる。図 3 Aは、凹部 3 0 3 が設けられた実施形態の斜視図であり、図 3 BはそのA-A' 線断面図である。

このように溝部 3 0 2 または凹部 3 0 3 を設けることにより、燃料極 1 0 2 a で生成された水素イオンが隣接する単位セルの酸化剤極 1 0 8 b へ移動するイオン伝導性を低下させることができる。それによって、電気的リークを抑え、燃料極 1 0 2 a で生成された水素イオンを効果的に酸化剤極 1 0 8 a に導くことができる。

さらに、溝部 3 0 2 または凹部 3 0 3 を、絶縁性を有する樹脂などで充填することもできる。このような構成を図 4 A、4 B、5 A、5 Bに示す。図 4 Aは溝部 3 0 2 に絶縁性フィルム 3 0 4 が挟め込まれた実施形態の斜視図であり、図 4 BはそのA-A' 線断面図である。また、図 5 Aは、凹部 3 0 3 に絶縁性樹脂 3 0 5 が充填された実施形態の斜視図であり、図 5 BはそのA-A' 線断面図である。このような構成を採用することにより、電気的リークをより一層抑制することが可能となる。なお、絶縁性フィルム 3 0 4 および絶縁性樹脂 3 0 5 の材料としては、フッ素系樹脂、ポリイミド系樹脂、フェノール系樹脂、エポキシ系樹脂などを用いることができる。

また、電気的リークは、水素イオンが接続電極 1 2 4 へ移動することによって生じる。これを防止するために、接続電極 1 2 4 の表面を絶縁性を有する材料でコーティングすることが好ましい。絶縁性を有する材料としては、例えば、シリコン、ポリテトラフルオロエチレン、ポリエチレン、ポリイミド系の材料が用いられ、これらの材料を、例えば蒸着法を用いてコーティングすることができる。

前記の通り、図 2 A～図 5 Bに示される各実施形態においては、電気的リークを抑制でき、燃料電池の単位セル間の間隔を固体高分子電解質膜 1 1 4 の膜厚以下にすることができるため、より高密度な実装を実現することができる。

なお、前記の各実施形態においては、簡単にするため、単位セルが2つの場合

について例示したが、本発明はこれに限られるものではなく、3つ以上の単位セルを用いた形態についても同様に適用することができる。

次に、本発明のより具体的な実施例について、比較例と対比しつつ、図面を参照して説明する。

(実施例1)

図1A、1Bを参照して、本発明の実施例1について説明する。

実施例1では、触媒として粒子径3～5nmの白金(Pt)－ルテニウム(Ru)合金を用い、この触媒を炭素微粒子(電気化学社製デンカブラック：商品名)に重量比50%だけ担持させた触媒担持炭素微粒子を使用した。なお、合金組成は50at%Ruで、合金と炭素微粉末の重量比は1：1とした。この触媒担持炭素微粒子1gを、アルドリッチ・ケミカル社製の5wt%ナフィオン溶液18ml(ナフィオンはデュポン社の登録商標)に加え、超音波混合機により50℃で3時間攪拌して触媒ペーストとした。この触媒ペーストを、カーボンペーパー(東レ製TGP-H-120：商品名)上に、スクリーン印刷法で2mg/cm²塗布し、120℃で乾燥して電極を得た。

デュポン社製ナフィオンからなる膜厚150μmの固体高分子電解質膜114に、後述する接続電極124を挿通させるための貫通孔を設けた。そして、前記したように作製された4つの電極を、固体高分子電解質膜114の両面に2つずつ、120℃で熱圧着して、燃料極102a、102bおよび酸化剤極108a、108bとした。こうして、2つの単位セルを作成した。なお、これら2つの単位セルの間の間隔は2.5mmとした。

そして、燃料極102a、102bおよび酸化剤極108a、108b上にそれぞれステンレス製の集電体120～123を配置して接続し、2つの単位セルを集電体120～123で挟持する構成とした。さらに、テトラフルオロエチレン樹脂によりコーティングが施されたステンレス製のM2ボルトである接続電極124を、固体高分子電解質膜114に設けられた貫通孔に挿通させ、この接続電極124によって、集電体121と集電体122とを直列に接続した。なお、接続電極124を貫通孔に挿通させる際には、テトラフルオロエチレン樹脂から

なるシール材 306 を貫通孔上に載せた状態で接続電極 124 を挿通させ、図示されるように貫通孔を完全に塞いだ。

さらに、図示しないが、テトラフルオロエチレン樹脂製の燃料容器を、固体高分子電解質膜 114 の燃料極 102 a、102 b 側に取り付けた。燃料極 102 a、102 b は、この燃料容器に覆われ、かつ固体高分子電解質膜 114 とこの燃料容器とで密閉された状態となるようにした。

このようにして作製した燃料電池の内部に、10%メタノール水溶液を 2 ml/min で流入し、外部を大気中に曝して電池特性を測定した。その結果、表 1 に示すように、電流密度 100 mA/cm² における電池電圧が 0.9 V であった。この電圧は、1 つの単位セルのみからなる燃料電池単体の電池電圧の 2 倍に相当し、実施例 1 では、2 つの単位セルの間に十分な間隔が確保されているため、電氣的リークがほとんど生じず、良好な結果が得られることが判る。

【表 1】

| | 電池電圧 |
|-------|--------|
| 実施例 1 | 0.9 V |
| 実施例 2 | 0.87 V |
| 実施例 3 | 0.9 V |
| 実施例 4 | 0.85 V |
| 実施例 5 | 0.9 V |
| 比較例 1 | 0.8 V |

(実施例 2)

図 2 A、2 B に示す実施例 2 でも、実施例 1 と同様の方法で作製した 4 つの電極を、1 枚の固体高分子電解質膜 114 の両面に 2 つずつ熱圧着して、燃料極 102 a、102 b および酸化剤極 108 a、108 b として、2 つの単位セルを作成した。ただし、これら 2 つの単位セルの間の間隔は 0.2 mm とし、この 2 つの単位セルの間に、幅 0.05 mm、深さ 0.1 mm の溝部 302 を設けた。そして、実施例 1 と同様に集電体 120 ~ 123 を配置して、テトラフルオロエ

チレン樹脂によりコーティングが施された直径0.05mmの金製のワイヤーである接続電極124を、固体高分子電解質膜114に挿通させ、この接続電極124によって、集電体121と集電体122とを直列に接続した。接続は超音波振動による熱圧着によって行った。そして、図示しない燃料容器を、固体高分子電解質膜114の燃料極102a、102b側に取り付けた。

実施例2の燃料電池に対しても、内部に10%メタノール水溶液を2ml/minで流入し、外部を大気中に曝して電池特性を測定した。その結果、表1に示すように、電流密度100mA/cm²における電池電圧が0.87Vであった。この電圧は、1つの単位セルのみからなる燃料電池単体の電池電圧の2倍に近く、実施例2では、単位セル間の間隔が小さいにもかかわらず、電氣的リークがかなり抑えられていることが判る。

なお、実施例2においては、溝部302を接続電極124の右側に設けた例について説明したが、溝部302を接続電極124の左側に設けてもよい。また、溝部302を接続電極124が貫通する形態を採ることもできる。

(実施例3)

図4A、4Bに示す実施例3は、実施例2と同様な構成において、固体高分子電解質膜114に設けられた溝部302に、ポリイミドからなる絶縁性フィルム304（デュポン社製カプトン（登録商標））を挟み込んで接着した構成である。その他の構成は実施例2と同様であり、実施例2と同様な方法により製造されている。

実施例3の燃料電池に対しても、内部に10%メタノール水溶液を2ml/minで流入し、外部を大気中に曝して電池特性を測定した。その結果、表1に示すように、電流密度100mA/cm²における電池電圧が0.9Vであった。この電圧は、実施例2の電池電圧よりも大きく、1つの単位セルのみからなる燃料電池単体の電池電圧の2倍に相当し、実施例2では電氣的リークがほとんど抑えられていることが判る。

なお、実施例3においては、溝部302を接続電極124の右側に設けた例について説明したが、溝部302を接続電極124の左側に設けてもよい。また、

溝部 302 を接続電極 124 が貫通する形態を採ることもできる。

(比較例 1)

図示しない比較例 1 では、固体高分子電解質膜 114 に溝部 302 が設けられておらず、それ以外は実施例 2 と同じ構成の燃料電池を、実施例 2 と同じ製造方法で製造した。2 つの単位セルの間の間隔は、実施例 2 と同様に、実施例 1 とは異なり 0.2 mm である。

比較例 1 の燃料電池に対しても、内部に 10%メタノール水溶液を 2 ml/min で流入し、外部を大気中に曝して電池特性を測定した。その結果、表 1 に示すように、電流密度 100 mA/cm² における電池電圧が 0.8 V であった。比較例 1 では、実施例 1 に比べて 2 つの単位セルの間隔を小さくして小型化を可能にしたものの、電氣的リークが生じて十分な電池電圧が得られないという結果になった。

(実施例 4)

図 3 A, 3 B に示す実施例 4 は、実施例 2 と同様な構成において、固体高分子電解質膜 114 に、溝部 302 に代えて、直径が 0.1 mm で深さが 0.1 mm の凹部 303 を複数個設けた構成である。その他の構成は実施例 2 と同様であり、実施例 2 と同様な方法により製造されている。

実施例 4 の燃料電池に対しても、内部にこのようにして作製した燃料電池の内部に、10%メタノール水溶液を 2 ml/min で流入し、外部を大気中に曝して電池特性を測定した。その結果、表 1 に示すように、電流密度 100 mA/cm² における電池電圧が 0.85 V であった。この電圧は、1 つの単位セルのみからなる燃料電池単体の電池電圧の 2 倍よりも小さいが、比較例 1 よりも大きく、電氣的リークがある程度抑えられていることが判る。

なお、実施例 4 においては、凹部 303 を接続電極 124 の右側に設けた例について説明したが、凹部 303 を接続電極 124 の左側に設けてもよい。また、凹部 303 を接続電極 124 が貫通する形態を採ることもできる。

(実施例 5)

図 5 A, 5 B に示す実施例 5 は、実施例 4 と同様な構成において、固体高分子

電解質膜 114 に設けられた凹部 303 に、絶縁性樹脂 305（エポキシ性樹脂）を充填した構成である。その他の構成は実施例 4 と同様であり、実施例 2～4 と同様な方法により製造されている。

実施例 5 の燃料電池に対しても、内部に 10%メタノール水溶液を 2 ml / min で流入し、外部を大気中に曝して電池特性を測定した。その結果、表 1 に示すように、電流密度 100 mA / cm² における電池電圧が 0.9 V であった。この電圧は、実施例 4 の電池電圧よりも大きく、1 つの単位セルのみからなる燃料電池単体の電池電圧の 2 倍に相当し、実施例 5 では電氣的リークがほとんど抑えられていることが判る。

以上説明した本発明の実施例 1～5 と比較例 1 の電池電圧測定結果について述べる。

比較例 1 は、2 つの単位セル間の間隔を固体高分子電解質膜の厚さと同程度（0.2 mm）まで狭めて、燃料電池の小型化を可能にしている。しかし、この比較例 1 では、電氣的リークが顕著であり、電圧降下が生じる。

これに対し、実施例 1 では、2 つの単位セルの間に広い間隔を確保することによって、電氣的リークがほとんど生じず、良好な結果が得られている。ただし、単位セル間の間隔が 3 mm と広い。

実施例 2 では、比較例 1 において顕著に生じた電氣的リークを、固体高分子電解質膜 114 に設けられた溝部 302 によって抑制することができ、その結果、2 つの単位セル間を固体高分子電解質膜の厚さと同程度（0.2 mm）まで狭めて燃料電池の小型化を可能にしながら、大きな電池電圧を得ることができる。

また、実施例 3 では、絶縁性フィルム 304 により電氣的リークの発生をさらに抑えることができ、実施例 2 よりもさらに高い電池電圧を得ることができる。もちろん、2 つの単位セル間の間隔は狭く燃料電池の小型化が可能である。

実施例 4 では、実施例 2 と同様に、比較例 1 において顕著に生じた電氣的リークを、固体高分子電解質膜 114 に設けられた凹部 303 によって抑制することができ、その結果、2 つの単位セル間を固体高分子電解質膜の厚さと同程度（0.2 mm）まで狭めて燃料電池の小型化を可能にしながら、大きな電池電圧を得

ることができる。

実施例5では、実施例3と同様に、絶縁性樹脂305により電氣的リークの発生をさらに抑えることができ、実施例4よりもさらに高い電池電圧を得ることができる。もちろん、2つの単位セル間の間隔は狭く燃料電池の小型化が可能である。

このように、実施例2～5の電池は、大きな電池電圧を得ることができ、しかも単位セルの間隔が0.2mmという極めて高密度な実装が可能であることが判明した。なお、前記した実施例では、2つの単位セルが電氣的に直列に接続された構成を示したが、同様の構成で、2つの単位セルの燃料極（あるいは酸化剤極）同士の間を接続することにより、電氣的に並列に接続することも可能である。また、前記した実施例では、電池電圧は0.9V程度であり、携帯用機器の駆動電源として十分な大きさとは言えないが、電氣的に接続する単位セル数を増やすことによって電圧あるいは電流を高くすることが可能である。さらに、接続方法を適宜選択することで電池出力を調整することが可能である。

請求の範囲

1. 固体電解質膜と、該固体電解質膜の一方の面に配置された複数の燃料極と、該固体電解質膜の他方の面に前記複数の燃料極と対向して配置された複数の酸化剤極とを含み、

前記燃料極と前記酸化剤極と前記固体電解質膜とからなる、複数の単位セルが電氣的に接続されていることを特徴とする液体燃料供給型燃料電池。

2. 請求項1に記載の液体燃料供給型燃料電池において、前記固体電解質膜を貫通する導電部材をさらに備え、複数の前記単位セルのうちの少なくとも2つが、前記導電部材を介して直列に接続されていることを特徴とする液体燃料供給型燃料電池。

3. 請求項2に記載の液体燃料供給型燃料電池において、前記導電部材と前記固体電解質膜との間に挟まれたシール材をさらに備えていることを特徴とする液体燃料供給型燃料電池。

4. 請求項2または3に記載の液体燃料供給型燃料電池において、前記導電部材の表面が、絶縁性を有する材料によりコーティングされていることを特徴とする液体燃料供給型燃料電池。

5. 請求項1から4のいずれか1項に記載の液体燃料供給型燃料電池において、前記固体電解質膜の、前記単位セルの間の領域に、低イオン伝導性領域が設けられていることを特徴とする液体燃料供給型燃料電池。

6. 請求項5に記載の液体燃料供給型燃料電池において、前記低イオン伝導性領域が、前記固体電解質膜に溝部が形成された領域であることを特徴とする液体燃料供給型燃料電池。

7. 請求項6に記載の液体燃料供給型燃料電池において、前記溝部に絶縁性樹脂が充填されていることを特徴とする液体燃料供給型燃料電池。

8. 請求項5に記載の液体燃料供給型燃料電池において、前記低イオン伝導性領域が、前記固体電解質膜に凹部が形成された領域であることを特徴とする液体燃料供給型燃料電池。

9. 請求項8に記載の液体燃料供給型燃料電池において、前記凹部に絶縁性樹脂

が充填されていることを特徴とする液体燃料供給型燃料電池。

10. 請求項7または9に記載の液体燃料供給型燃料電池において、前記絶縁性樹脂が、フッ素系樹脂、ポリイミド系樹脂、フェノール系樹脂、エポキシ系樹脂のいずれかであることを特徴とする液体燃料供給型燃料電池。

11. 請求項1から10のいずれか1項に記載の液体燃料供給型燃料電池において、複数の前記燃料極を覆う燃料流路をさらに備え、該燃料流路の隔壁の一部が前記固体電解質膜であることを特徴とする液体燃料供給型燃料電池。

12. 請求項1から11のいずれか1項に記載の液体燃料供給型燃料電池において、複数の前記単位セルのうちの少なくとも2つが並列に接続されていることを特徴とする液体燃料供給型燃料電池。

Fig. 1A

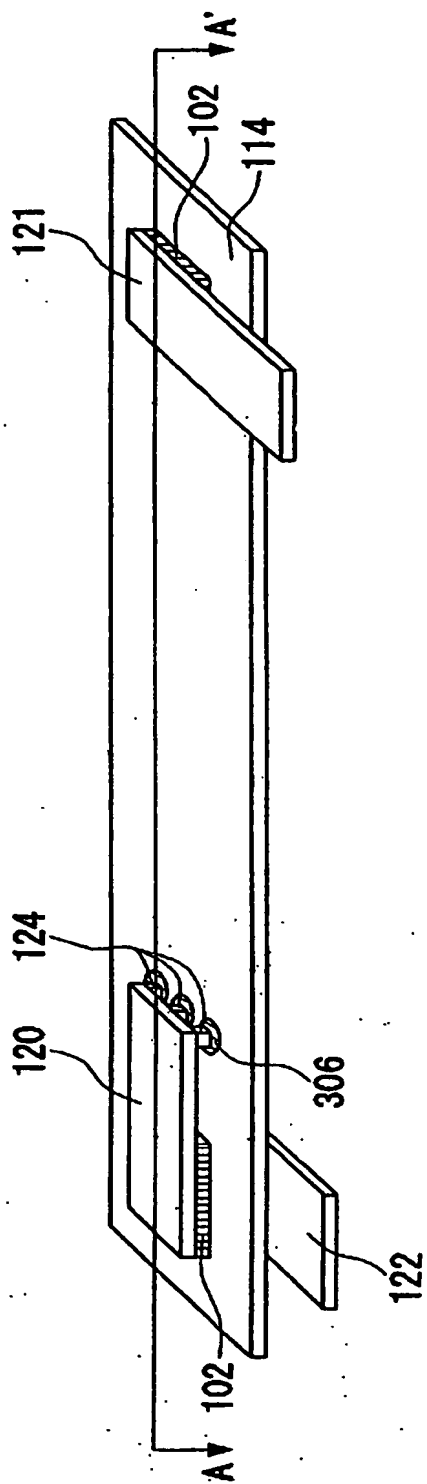


Fig. 1B

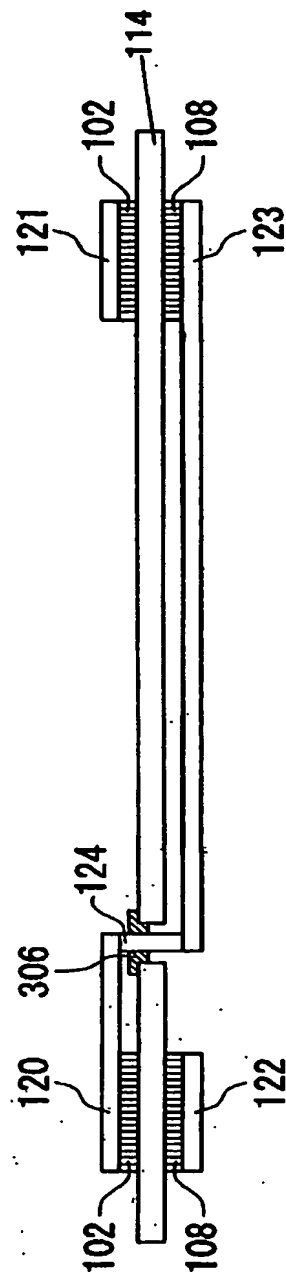


Fig. 2A

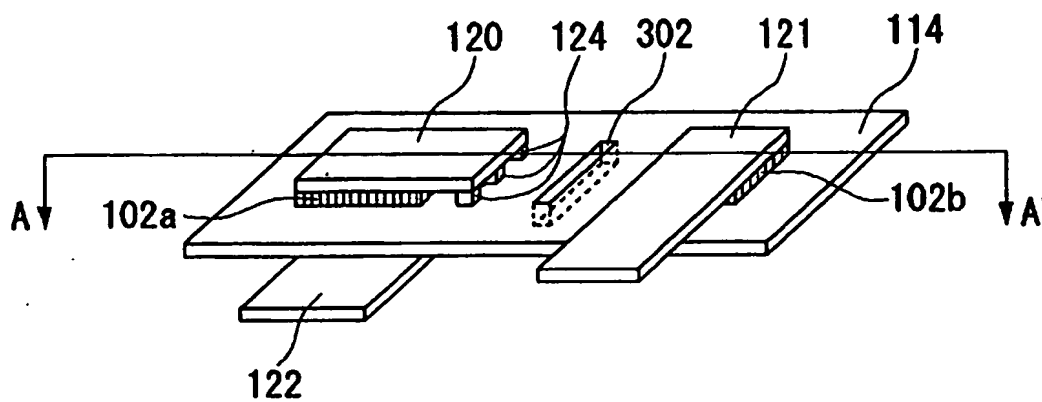


Fig. 2B

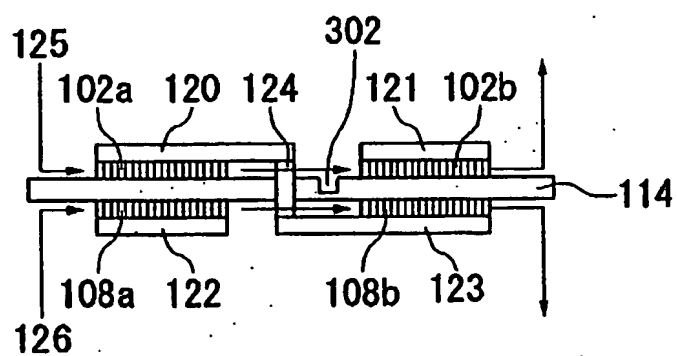


Fig. 3A

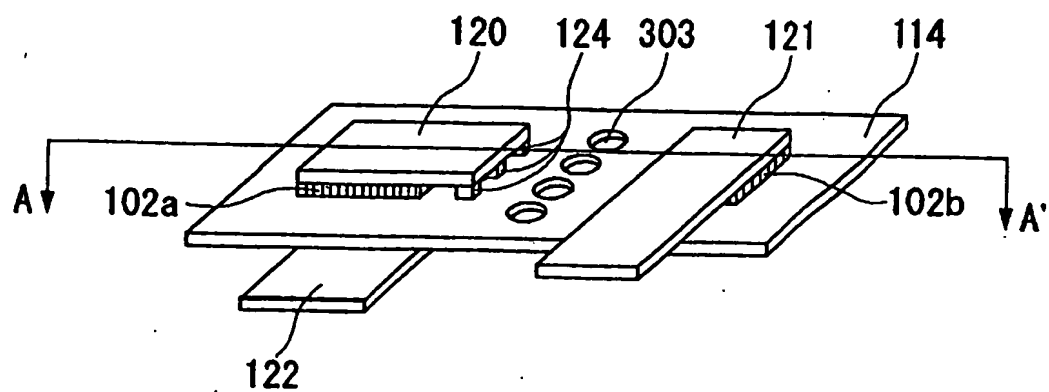


Fig. 3B

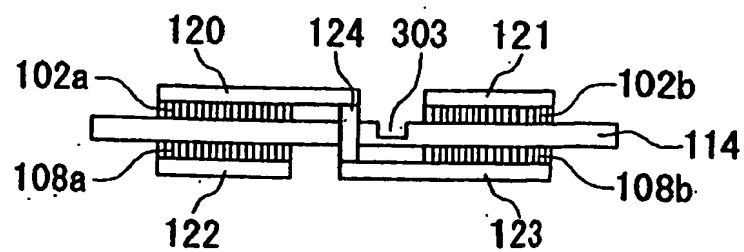


Fig. 4A

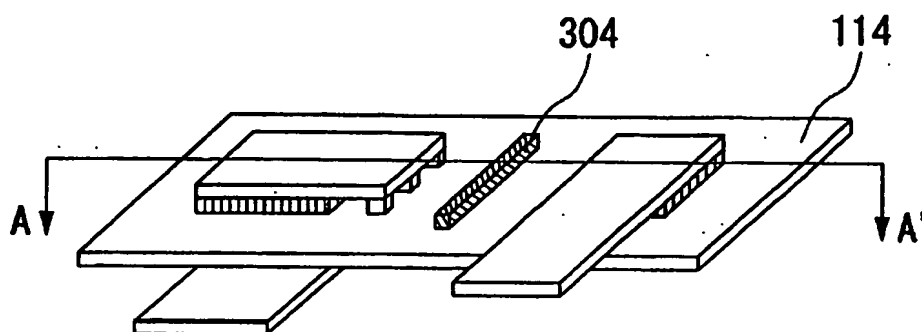


Fig. 4B

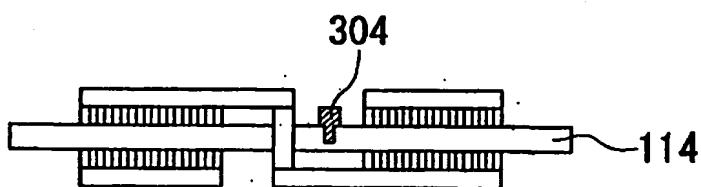


Fig. 5A

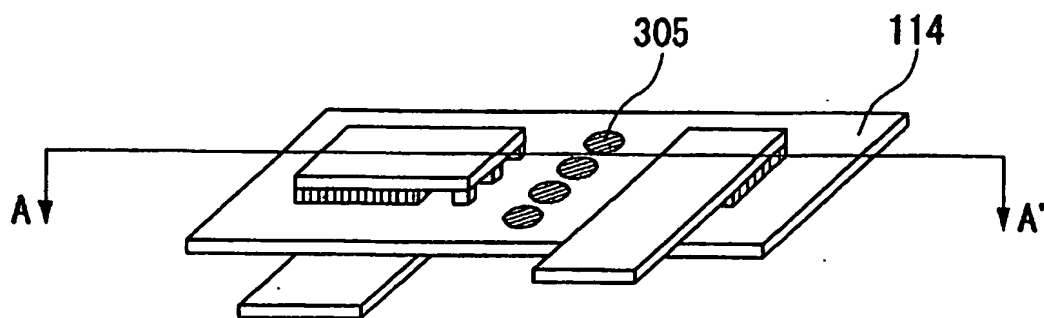
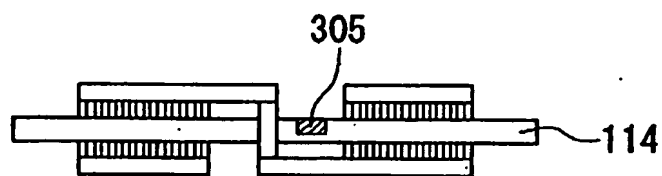


Fig. 5B



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP03/06802

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl⁷ H01M8/24, 8/10, 8/02

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl⁷ H01M8/24, 8/10, 8/02

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

| | | | |
|---------------------------|-----------|----------------------------|-----------|
| Jitsuyo Shinan Koho | 1922-1996 | Toroku Jitsuyo Shinan Koho | 1994-2003 |
| Kokai Jitsuyo Shinan Koho | 1971-2003 | Jitsuyo Shinan Toroku Koho | 1996-2003 |

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

| Category* | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages | Relevant to claim No. |
|-------------|---|------------------------------------|
| X Y A | WO 00/69011 A1 (SFC SMART FUEL CELL GMBH.), 16 November, 2000 (16.11.00), Full text & EP 1194971 A2 & JP 2002-544650 A | 1-3, 5, 11-12 2-3, 5 4, 6-10 |
| X Y A | JP 2002-110215 A (KRI International, Inc.), 12 April, 2002 (12.04.02), Full text (Family: none) | 1-3, 5, 11-12 2-3, 5 4, 6-10 |
| X Y A | JP 2001-273914 A (NGK Insulators, Ltd.), 05 October, 2001 (05.10.01), Full text (Family: none) | 1-3, 5, 11-12 2-3, 5 4, 6-10 |

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C. ☐ See patent family annex.

| | |
|---|--|
| * Special categories of cited documents: | "T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention |
| "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance | "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone |
| "E" earlier document but published on or after the international filing date | "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art |
| "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified) | "&" document member of the same patent family |
| "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means | |
| "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed | |

Date of the actual completion of the international search
02 September, 2003 (02.09.03)

Date of mailing of the international search report
30 September, 2003 (30.09.03)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP03/06802

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

| Category* | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages | Relevant to claim No. |
|-------------|---|-------------------------------|
| X Y A | JP 8-130023 A (Aisin Seiki Co., Ltd.), 21 May, 1996 (21.05.96), Full text & US 5824428 A | 1, 11-12 2-3, 5 4, 6-10 |
| X Y A | JP 7-169499 A (IVAC Corp.), 04 July, 1995 (04.07.95), Full text & EP 198483 A & US 4648955 A | 1, 11-12 2-3, 5 4, 6-10 |
| X A | JP 2002-56855 A (Mitsubishi Electric Corp.), 22 February, 2002 (22.02.02), Full text (Family: none) | 1, 5, 12 2-4, 6-11 |
| X A | JP 10-510390 A (Fraunhofer-Gesellschaft Zur Forderung Der Angewandten Forschung E.V.), 06 October, 1998 (06.10.98), Full text & WO 96/18216 A1 & EP 797847 A1 & US 5863672 A | 1, 5, 12 2-4, 6-11 |
| P, X | JP 2002-280016 A (Samsung Electronics Co., Ltd.), 27 September, 2002 (27.09.02), Full text & EP 1241725 A2 & US 2002/0132151 A1 | 1-3, 5, 11 |
| E, X | JP 2003-197225 A (Dainippon Printing Co., Ltd.), 11 July, 2003 (11.07.03), Full text & WO 03/58738 A1 | 1-3, 5, 11 |

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl⁷ H01M8/24, 8/10, 8/02

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl⁷ H01M8/24, 8/10, 8/02

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1922-1996年
 日本国公開実用新案公報 1971-2003年
 日本国登録実用新案公報 1994-2003年
 日本国実用新案登録公報 1996-2003年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

C. 関連すると認められる文献

| 引用文献の カテゴリー* | 引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示 | 関連する 請求の範囲の番号 |
|-----------------|--|------------------------------------|
| X Y A | WO 00/69011 A1 (SFC SMART FUEL CELL GMBH) 2000. 11. 16, 全文&EP 1194971 A2 &JP 2002-544650 A | 1-3, 5, 11-12 2-3, 5 4, 6-10 |
| X Y A | JP 2002-110215 A (株式会社関西新技術研究所) 2002. 04. 12, 全文 (ファミリーなし) | 1-3, 5, 11-12 2-3, 5 4, 6-10 |

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
 「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
 「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)
 「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
 「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
 「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
 「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
 「&」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

02. 09. 03

国際調査報告の発送日

30.09.03

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/J P)
 郵便番号100-8915
 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

原 賢一

印

4X 9062

電話番号 03-3581-1101 内線 3477

| C (続き) . 関連すると認められる文献 | | |
|-----------------------|--|------------------------------------|
| 引用文献の カテゴリー* | 引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示 | 関連する 請求の範囲の番号 |
| X Y A | JP 2001-273914 A (日本碍子株式会社) 2001. 10. 05, 全文 (ファミリーなし) | 1-3, 5, 11-12 2-3, 5 4, 6-10 |
| X Y A | JP 8-130023 A (アイシン精機株式会社) 1996. 05. 21, 全文&US 5824428 A | 1, 11-12 2-3, 5 4, 6-10 |
| X Y A | JP 7-169499 A (アイヴァック コーポレーション) 1995. 07. 04, 全文&EP 198483 A &US 4648955 A | 1, 11-12 2-3, 5 4, 6-10 |
| X A | JP 2002-56855 A (三菱電機株式会社) 2002. 02. 22, 全文 (ファミリーなし) | 1, 5, 12 2-4, 6-11 |
| X A | JP 10-510390 A (フラウンホッフアーゲーゼルシャ フト ツァー フェーデルング デア アンゲバンテン フォルシ ュング エー ファー) 1998. 10. 06, 全文 &WO 96/18216 A1&EP 797847 A1 &US 5863672 A | 1, 5, 12 2-4, 6-11 |
| P, X | JP 2002-280016 A (三星電子株式会社) 2002. 09. 27, 全文&EP 1241725 A2 &US 2002/0132151 A1 | 1-3, 5, 11 |
| E, X | JP 2003-197225 A (大日本印刷株式会社) 2003. 07. 11, 全文&WO 03/58738 A1 | 1-3, 5, 11 |

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ BLACK BORDERS
- ☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- ☒ FADED TEXT OR DRAWING
- ☐ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- ☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
- ☐ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- ☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
- ☒ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- ☐ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- ☐ OTHER: _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.